

Paris 1971

ORSAY
Série A
N° d'Ordre : 812

**ETUDE DE LA STRUCTURE DE QUELQUES METAUX LIQUIDES PAR
DIFFRACTION DE NEUTRONS**

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en partie la thèse de Doctorat ès Sciences Physiques
enregistrée au C.N.R.S. sous le Numéro A.O. 6021 de

MARC BREUIL

Soutenue le 28 Juin 1971 à la FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY
devant le jury :

MM. A. GUINIER
J. FRIEDEL
A. HERPIN
Mme F. CYROT

DETERMINATION DE LA FONCTION DE DISTRIBUTION DE PAIRE DU CUIVRE LIQUIDE PAR DIFFRACTION DE NEUTRONS

M. BREUIL et G. TOURAND

Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique,
Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay,
BP. n°2, 91-Gif-sur-Yvette

(Received 18 February 1969; in revised form 3 June 1969)

Résumé—Le facteur de structure du cuivre liquide a été déterminé par diffraction de neutrons à trois températures différentes (1150°, 1300°, 1450°C). La variation du maximum de $i(k)$ a été étudiée de 1086° à 1492°C faisant apparaître une dépendance linéaire en $1/T$. La fonction de distribution de paire $g(r)$ et la fonction de corrélation directe $c(r)$ ont été obtenues par transformation de Fourier et le potentiel de paire $V(r)$ en a été déduit à l'aide des équations de Percus-Yevick et de la chaîne hyper tressée. Ces deux approximations ne conviennent pas au cas du cuivre liquide, mais la partie répulsive du potentiel est en bon accord avec un modèle de sphères dures de coeur $\sigma = 2,2 \text{ \AA}$.

Abstract—The structure factor of liquid copper has been determined for three different temperatures (1150°, 1300°, 1450°C) by neutron diffraction. The variation of the maximum of $i(k)$ with temperature has been studied from 1086° to 1492°C and shows a linear dependence with $1/T$. The pair distribution function $g(r)$ and the direct correlation function $c(r)$ have been obtained by Fourier transformation and the pair potential $V(r)$ was derived from these using the Percus-Yevick and hypernetted chain equations. These two approximations are not applicable to liquid copper but the repulsive part of the potential is in good agreement with a hard sphere model of core $\sigma = 2.2 \text{ \AA}$.

1. INTRODUCTION

LES paramètres thermodynamiques d'un liquide (pression, volume, chaleur spécifique, température, etc...) peuvent être déterminés à partir de deux fonctions[1–3]; d'une part, la fonction de distribution de paire $g(r)$ qui dépend de la densité du liquide et de sa température et d'autre part le potentiel décrivant les interactions atomiques dans le liquide. Nous supposons ici que ce potentiel peut être mis sous la forme d'une somme de potentiels de paire, c'est-à-dire que

$$U = \sum_{i,j} V|\vec{r}_i - \vec{r}_j|.$$

Cette hypothèse est usuelle dans l'étude des fluides en mécanique statistique classique mais pose peut-être un problème dans le cas par exemple des métaux de transition liquides. Actuellement, il n'existe pas de méthode expérimentale permettant de déter-

miner le potentiel de paire $V(r)$. Mais des mesures de diffraction de Rayons X ou de neutrons permettent d'obtenir une bonne connaissance de la fonction de distribution de paire $g(r)$. En effet, $g(r)$ décrit l'arrangement statistique des atomes dans le liquide et détermine ainsi la distribution angulaire de l'intensité diffusée.

Dans le cas des neutrons, si $I(K)$ est l'intensité totale diffusée par l'échantillon liquide, $I_{\text{coh}}(k)$ la partie cohérente de cette intensité et $I_{\text{coh}}(\infty)$ la valeur que prend $I_{\text{coh}}(k)$ lorsque k est suffisamment grand pour que les effets d'interférence ne puissent plus être observés, on peut définir une fonction $i(k)$ de l'intensité diffusée par la relation:

$$i(k) = \frac{I_{\text{coh}}(k)}{I_{\text{coh}}(\infty)} - 1. \quad (1)$$

Dans ces expressions, on a posé $k = 4\pi/\lambda \sin \theta$. θ est l'angle de Bragg et λ la

longueur d'onde du rayonnement monochromatique utilisé.

On peut alors montrer que la fonction $i(k)$ possède les propriétés suivantes:

$$a- \quad 1 + i(0) = k_B T \rho_0 \beta \quad (2)$$

β est le coefficient de compressibilité isotherme du liquide et ρ_0 sa densité atomique moyenne exprimée en nombre d'atomes par unité de volume.

$b- \quad i(k)$ est reliée à $g(r)$ par une relation de transformée de Fourier soit [4-7]:

$$\frac{\rho(r)}{\rho_0} = g(r) = 1 + \frac{1}{2\pi^2 \rho_0 r} \int_0^\infty k i(k) \sin kr dk \quad (3)$$

où $\rho(r)$ est la densité atomique à la distance r d'un atome de référence.

De plus, on peut définir comme l'ont fait Zernicke et Ornstein[8] une fonction de corrélation directe $c(r)$ par la relation;

$$c(r) = \frac{1}{2\pi^2 \rho_0 r} \int_0^\infty \frac{k i(k)}{1 + i(k)} \sin kr dk. \quad (4)$$

Les relations (3) et (4) fournissent donc $g(r)$ et $c(r)$ à partir des valeurs de $i(k)$ mesurées expérimentalement. Il existe alors diverses approximations qui relient $g(r)$ et $c(r)$ au potentiel de paire $V(r)$. Celles qui ont fourni les meilleurs résultats pour les quantités thermodynamiques, notamment dans le cas de l'argon[9] au voisinage du point triple et qui sont aussi les plus simples à interpréter numériquement sont[10]:

1. L'approximation 'Hyper Netted Chain' HNC qui fournit une relation simple entre $g(r)$, $c(r)$ et $V(r)$ à savoir:

$$V(r) = k_B T [g(r) - 1 - c(r) - \text{Log } g(r)]. \quad (5)$$

2. L'équation de Percus-Yevick qui fournit aussi une relation simple reliant $g(r)$, $c(r)$ et $V(r)$ soit:

$$V(r) = k_B T \text{Log} \left[1 - \frac{c(r)}{g(r)} \right]. \quad (6)$$

Dans le travail présenté ici, nous avons déterminé $i(k)$ pour le cuivre à diverses températures et nous en avons déduit les fonctions $g(r)$ et $c(r)$ à ces températures. Puis, à l'aide des modèles HNC et PY nous avons tenté de déterminer le potentiel de paire $V(r)$. Nous verrons alors que ces approximations ne donnent pas de résultats corrects pour le cuivre, rejoignant en cela les conclusions auxquelles aboutissait North pour le plomb[11].

2. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nous avons utilisé le dispositif classique d'un des spectromètres du réacteur EL3 à Saclay dont le faisceau de neutrons monochromatique a une longueur d'onde $\lambda = 1,138 \text{ \AA}$. Les hautes températures nécessaires à ces expériences ont été obtenues au moyen d'un four à induction de haute fréquence permettant d'atteindre 2000°C . Les inducteurs sont disposés de manière à être situés en dehors des faisceaux incident et diffusés. L'échantillon de cuivre utilisé, de forme cylindrique et de dimensions: diamètre = 10 mm et hauteur = 60 mm est placé dans un creuset en tantale. Celui-ci est placé dans un tube cylindrique de quartz de 30 mm de diamètre à l'intérieur duquel on fait un vide dynamique poussé ($p \approx 10^{-6} \text{ mm Hg}$).

Grâce à ce montage, le faisceau de neutrons ne traverse, en dehors du creuset contenant l'échantillon, qu'une faible épaisseur de quartz amorphe et faiblement absorbant. La température est mesurée à l'aide de thermocouples $W/\text{Ré}$ placés à la base du creuset au voisinage immédiat du liquide. Plusieurs étalonnages effectués sur divers matériaux et en particulier lors de la fusion du cuivre à 1083°C ont montré que l'erreur dans la mesure de la température est $\leq 2^\circ\text{C}$. Celle-ci est très finement régulée par action continue sur la tension du générateur haute fréquence



de sorte que ses fluctuations sont extrêmement faibles et de l'ordre de 1° à 1500°C . De plus, au dessus de la température de fusion, des contrôles ont montré que les gradients de température radiaux et longitudinaux sont négligeables. Enfin, pour éviter l'évaporation du cuivre, le creuset est fermé à l'aide d'une pièce de tantale de forme spéciale. Grâce à ce dispositif, les vapeurs de cuivre se condensent de sorte que la quantité de cuivre irradiée par le faisceau de neutrons est constante durant toute la durée de l'expérience.

3. LA DETERMINATION EXPERIMENTALE DE $i(k)$ ET LES MESURES EFFECTUEES

On commence par déterminer l'intensité totale $I(2\theta)$ diffusée par l'échantillon liquide. Compte tenu du montage expérimental décrit ci-dessus, ceci se fait de la manière habituelle en mesurant:

1. l'intensité diffusée par le creuset plein soit $I_1(2\theta)$;
2. l'intensité diffusée par le creuset vide à la même température soit $I_2(2\theta)$;
3. l'intensité diffusée par le tube de quartz

seul soit $I_3(2\theta)$ et en effectuant la différence $I_1 - I_2 - I_3$ corrigée des facteurs d'absorption.

La Fig. 1(A) montre la courbe $I(2\theta)$ obtenue à $T = 1150^\circ\text{C}$. On détermine ensuite la partie cohérente de cette intensité soit $I_{\text{coh}}(2\theta)$ en remarquant que la diffusion nucléaire incohérente et la diffusion multiple étant isotropes, il suffit de retrancher des valeurs obtenues pour $I(2\theta)$ une quantité constante que l'on détermine à l'aide de l'équation (2) car $i(0)$ est connue [12].

Pour trois valeurs de la température: 1150° , 1300° et 1450°C nous avons déterminé la spectre de diffusion du cuivre depuis $2\theta = 1^\circ 10'$ jusqu'à $2\theta = 116^\circ$ soit pour k variant de $0,11 \text{ \AA}^{-1}$ jusqu'à $9,4 \text{ \AA}^{-1}$.

A 1150°C les mesures ont été faites avec un pas de $6'$ soit dix comptages par degré, à 1300°C , six comptages par degré et à 1450°C , quatre comptages par degré. Ces comptages duraient assez longtemps pour obtenir une bonne précision statistique.

Enfin pour neuf autres valeurs de la température comprises entre 1086° et 1492°C , nous avons étudié les variations du maximum

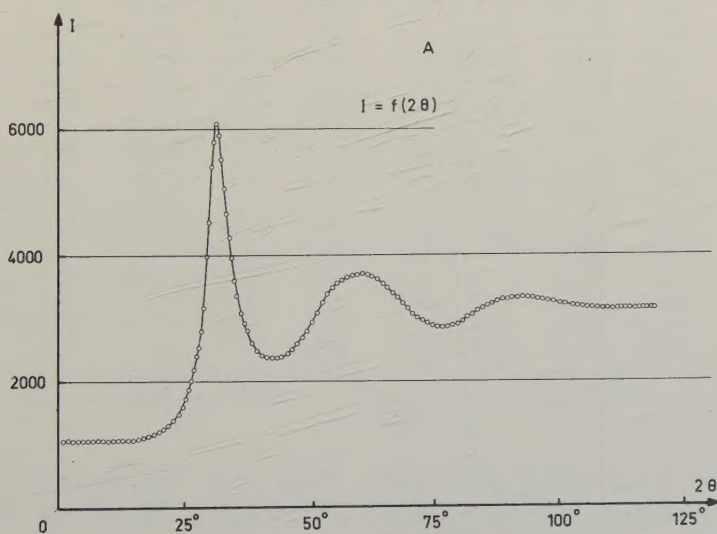


Fig. 1(A). Variation de l'intensité totale diffusée par l'échantillon de cuivre liquide en fonction de l'angle de Bragg, 2θ à $T = 1150^\circ\text{C}$.

de $i(k)$ soit $i(k_0)$ dans les mêmes conditions expérimentales.

4. RESULTATS OBTENUS

(a) Fonction $i(k)$

La Fig. 1(B) montre les variations de $i(k)$ pour $T = 1150^\circ$, 1300° et 1450°C et le Tableau 1 fournit les valeurs numériques correspondantes. On remarque que la position des maximums de $i(k)$ reste pratiquement inchangée quand la température varie. De plus le premier maximum se produit pour $k = k_0 = 3 \text{ \AA}^{-1}$. Dans le cuivre solide, la première raie de Bragg (111) apparaît exactement à la même valeur k_0 . Ce résultat semble assez général et peut être dû au fait qu'il s'agit d'une structure compacte CFC.

Enfin pour $k < 2,5 \text{ \AA}^{-1}$, les trois courbes $i(k)$ sont très semblables entre elles.

Pour $k = 0$, la valeur de $i(0)$ mesurée [12] à partir de l'équation (2) est:

$$i(0) = -0,984.$$

Il est important de remarquer que les mesures de $i(k)$ sont assez imprécises. Cette imprécision due aux mesures statistiques, aux corrections de facteur d'absorption, à la nécessité d'effectuer des différences entre des termes dont les ordres de grandeur sont souvent assez voisins etc... ne nous paraît pas susceptible d'être améliorée de façon très nette en l'état actuel des techniques expérimentales. L'erreur est d'environ 4% au voisinage de $k = k_0$ et atteint 7% quand on s'éloigne de k_0 .

(b) Fonction $g(r)$

La Fig. 2 montre les variations de $g(r)$ aux trois températures considérées. Les positions des extrémums de $g(r)$ ne varient pas avec la température. Ces courbes montrent bien que la zone de densité atomique maximale qui correspond au premier pic de $g(r)$ est située à $2,55 \text{ \AA}$. Ceci est équivalent à la distance entre plus proches voisins dans

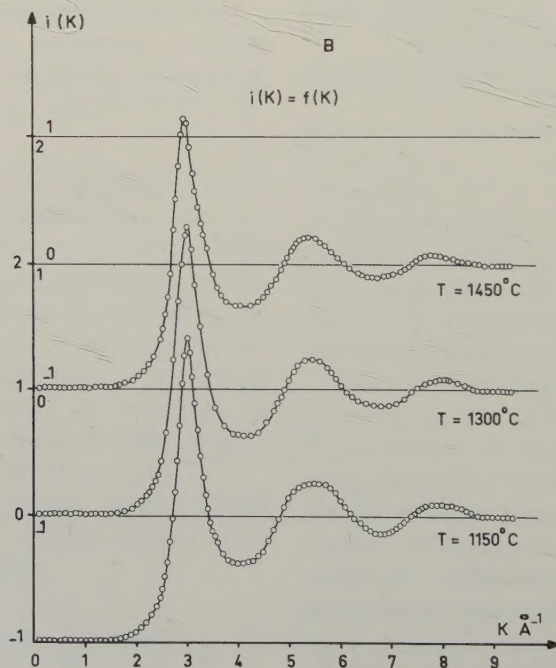


Fig. 1(B). Variation de la fonction $i(k)$ à différentes températures.

Tableau 1. Valeurs numériques de la fonction $i(k) = f(k, T)$ aux températures: 1150°C, 1300°C, 1450°C

$k \text{ \AA}^{-1}$	T			$k \text{ \AA}^{-1}$	T		
	1150°C	1300°C	1450°C		1150°C	1300°C	1450°C
0,106	-0,981	-0,982	-0,985	3,96	-0,371	-0,350	-0,324
0,193	-0,983	-0,983	-0,989	4,05	-0,373	-0,356	-0,326
0,289	-0,985	-0,981	-0,989	4,14	-0,363	-0,358	-0,329
0,385	-0,977	-0,979	-0,978	4,23	-0,360	-0,357	-0,329
0,482	-0,980	-0,978	-0,984	4,36	-0,325	-0,336	-0,317
0,578	-0,984	-0,986	-0,983	4,45	-0,289	-0,305	-0,280
0,674	-0,984	-0,984	-0,992	4,54	-0,248	-0,268	-0,238
0,770	-0,990	-0,980	-0,981	4,67	-0,135	-0,175	-0,171
0,866	-0,988	-0,981	-0,984	4,75	-0,057	-0,125	-0,118
0,962	-0,983	-0,990	-0,985	4,93	0,089	-0,013	0,016
1,058	-0,986	-0,982	-0,976	5,01	0,156	0,040	0,082
1,154	-0,983	-0,981	-0,977	5,10	0,197	0,080	0,133
1,250	-0,985	-0,981	-0,989	5,18	0,228	0,125	0,177
1,346	-0,985	-0,988	-0,988	5,27	0,250	0,168	0,197
1,441	-0,981	-0,986	-0,987	5,35	0,256	0,227	0,200
1,54	-0,974	-0,985	-0,977	5,44	0,261	0,244	0,205
1,63	-0,972	-0,977	-0,960	5,52	0,261	0,222	0,204
1,73	-0,960	-0,960	-0,950	5,69	0,261	0,151	0,158
1,82	-0,952	-0,955	-0,945	5,77	0,240	0,128	0,135
1,92	-0,931	-0,945	-0,933	5,93	0,172	0,048	0,067
2,01	-0,913	-0,913	-0,904	6,01	0,127	0,013	0,039
2,11	-0,876	-0,870	-0,867	6,17	0,040	-0,042	-0,018
2,20	-0,833	-0,824	-0,827	6,25	-0,000	-0,064	-0,045
2,30	-0,778	-0,764	-0,776	6,41	-0,052	-0,098	-0,080
2,39	-0,717	-0,685	-0,704	6,57	-0,103	-0,111	-0,098
2,48	-0,605	-0,575	-0,600	6,72	-0,134	-0,116	-0,100
2,58	-0,412	-0,346	-0,401	6,87	-0,128	-0,120	-0,093
2,67	-0,130	-0,010	-0,084	7,02	-0,108	-0,108	-0,082
2,76	0,254	0,355	0,265	7,17	-0,065	-0,084	-0,070
2,86	0,766	0,794	0,766	7,32	-0,014	-0,037	-0,033
2,90	1,045	0,979	1,010	7,46	0,034	0,004	0,017
2,95	1,269	1,212	1,140	7,60	0,076	0,033	0,051
3,00	1,411	1,282	1,105	7,74	0,097	0,055	0,068
3,09	1,135	1,096	0,810	7,88	0,096	0,075	0,073
3,14	0,954	0,893	0,699	8,01	0,098	0,088	0,059
3,23	0,560	0,544	0,429	8,14	0,095	0,083	0,049
3,32	0,239	0,279	0,211	8,27	0,088	0,063	0,038
3,41	0,031	0,074	0,035	8,33	0,077	0,056	0,028
3,50	-0,120	-0,084	-0,094	8,40	0,070	0,041	0,023
3,60	-0,208	-0,186	-0,190	8,46	0,060	0,034	0,019
3,69	-0,288	-0,265	-0,252	8,52	0,053	0,022	0,011
3,78	-0,343	-0,311	-0,293	8,58	0,044	0,007	0,004
3,87	-0,363	-0,335	-0,315	> 8,70	≈ 0	≈ 0	≈ 0

le cuivre solide, distance qui varie entre 2,55 Å et 2,60 Å suivant la température.

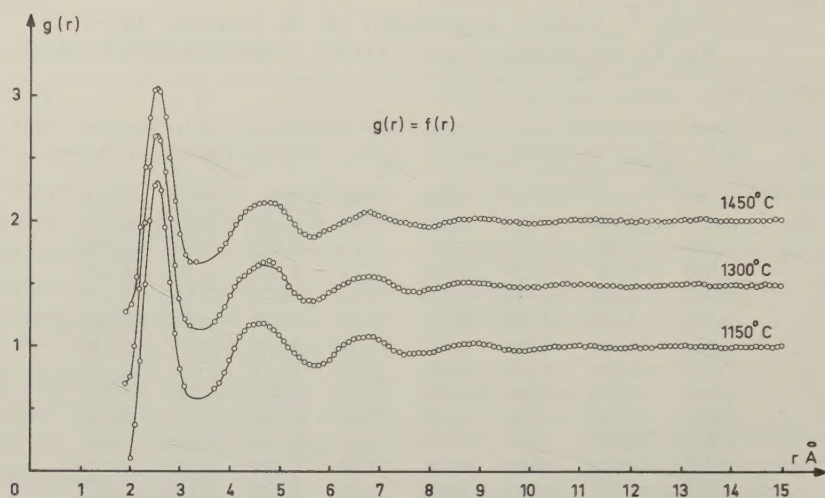
(c) Fonction $i(k_0) = f(T)$

Une étude complète de la variation de $i(k_0)$ en fonction de la température a été

effectuée et le Tableau 2 ci-dessous indique les différentes valeurs obtenues.

La Fig. 3 montre les variations de $i(k_0)$ en fonction de $1/T$ où T est alors la température absolue.

Dans le domaine de température étudié,

Fig. 2. Variation de la fonction $g(r)$ aux trois températures considérées.Tableau 2. Valeurs mesurées de $i(k_0)$ en fonction de la température de 1086°C à 1492°C

T°C	1086	1107	1129	1150	1156	1183	1236	1290	1300	1344	1450	1492
$i(k_0)$	1,56	1,54	1,54	1,41	1,50	1,45	1,36	1,26	1,29	1,20	1,14	1,13

ces variations sont bien représentées par l'équation:

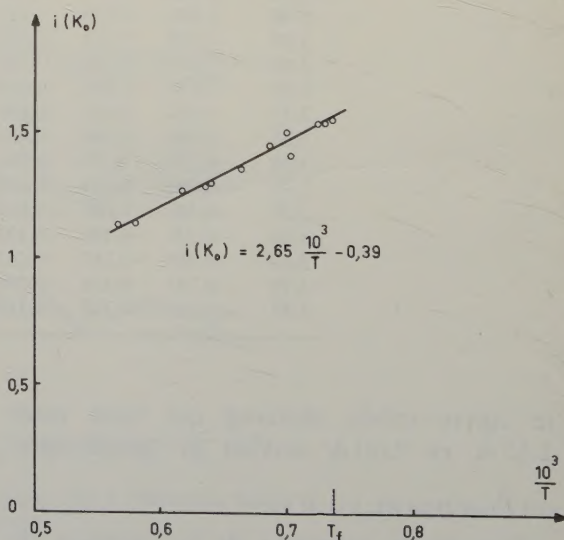
$$i(k_0) = 2,65 \frac{10^3}{T} - 0,39,$$

qui montre qu'au-dessus de la température de fusion, l'intensité du premier pic décroît comme $1/T$.

(d) Fonction $c(r)$

La Fig. 4 montre ses variations pour les trois températures considérées ici. Pour $r = 0$; on trouve $c(0) = -78$ pour $T = 1150^\circ$ et 1450°C et $c(0) = -80$ pour $T = 1300^\circ\text{C}$. La fonction $c(r)$ dépend très fortement des valeurs de $i(k)$ pour k petit c'est-à-dire $< 2,5 \text{ \AA}^{-1}$. Ainsi la précision sur $i(k)$ n'est pas assez grande pour pouvoir déterminer correctement $c(r)$ pour $r > 2,5 \text{ \AA}$. La Fig. 5 exprime bien ceci en montrant, pour $T = 1300^\circ\text{C}$, trois courbes $c(r)$ 'possibles' obtenues en faisant varier, à l'intérieur des barres d'erreur expérimentale la fonction $i(k)$ pour

$k < 2,5 \text{ \AA}^{-1}$. La courbe 1 de la Fig. 5 correspond aux valeurs de $i(k)$ données dans le Tableau 1 et à la Fig. 4 pour $T = 1300^\circ\text{C}$.

Fig. 3. Variation de $i(k_0)$ en fonction de $1/T$.

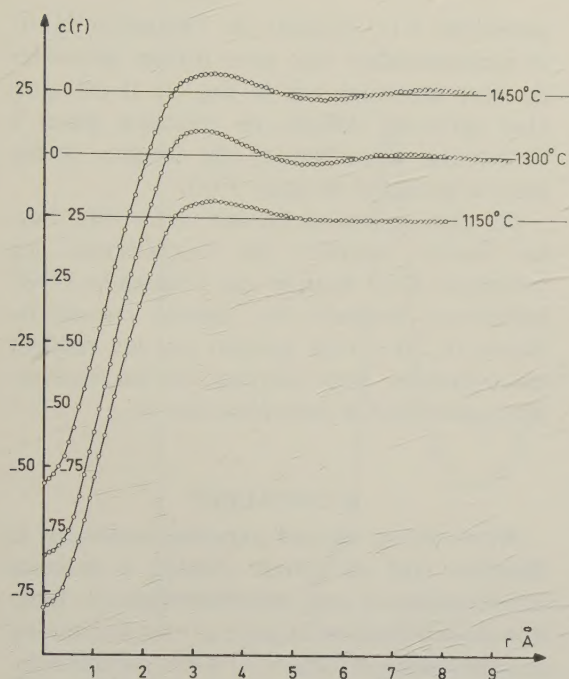


Fig. 4. Variation de la fonction $c(r)$ aux trois températures considérées.

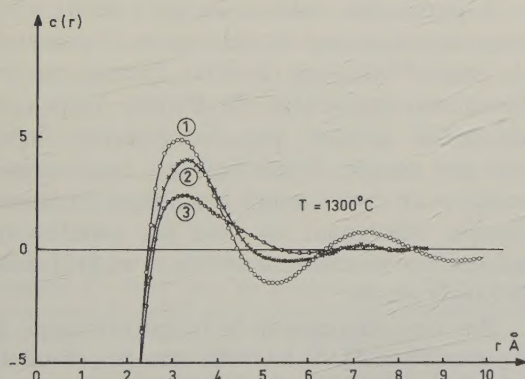


Fig. 5. Variation de la fonction $c(r)$ pour trois valeurs 'possibles' de la fonction $i(k)$ pour $k < 2,5 \text{ \AA}^{-1}$ et pour une température de 1300°C . La courbe 1 correspond aux valeurs de $i(k)$ données dans le Tableau 1.

5. DISCUSSION

A partir des résultats obtenus pour $g(r)$ et $c(r)$ nous avons tenté de déterminer le potentiel de paire $V(r)$ à partir des équations

de Percus-Yevick et de la chaîne hyper tressée.

Equation de Percus-Yevick

La Fig. 6 montre les potentiels ainsi obtenus. Pour les valeurs de r comprises approximativement entre 2,6 et 4,5 Å, nous avons obtenu $g(r) < c(r)$ de sorte que

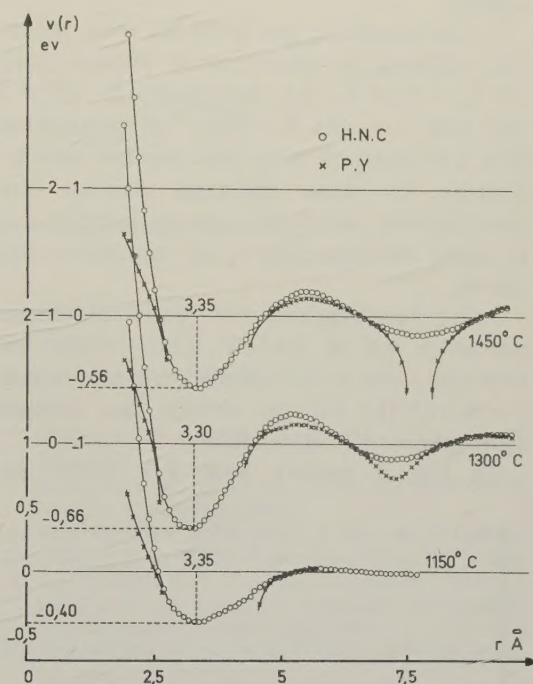


Fig. 6. Représentation de la fonction $V(r)$ obtenue par les équations HNC et P.Y. aux trois températures considérées. Les valeurs de $c(r)$ utilisées sont celles représentées sur la Fig. 4.

l'équation de Percus-Yevick ne nous a pas permis de déterminer le potentiel de paire $V(r)$. Ceci se produit pour les trois expériences indépendantes réalisées à des températures différentes. De plus, à $T = 1300^\circ\text{C}$ les trois fonctions $c(r)$ 'possibles' représentées sur la Fig. 5 conduisent à un résultat identique. Il est à noter que pour la forme III de leur fonction de corrélation directe $c(r)$. North *et al.*[11] obtiennent un résultat semblable dans le cas du plomb.

Equation HNC

L'équation HNC (5) nous fournit la fonction $V(r)$ représentée également sur la Fig. 6. Les valeurs de $c(r)$ utilisées sont celles représentées sur la Fig. 4. Plusieurs raisons donnent à penser que les potentiels ainsi obtenus ne représentent pas correctement les interactions atomiques dans le cuivre liquide:

1. On remarque que pour les trois potentiels obtenus, le minimum se produit pour $r = r_m \approx 3,35 \text{ \AA}$. Le maximum de $g(r)$ a lieu pour $r = 2,55 \text{ \AA}$, valeur qui correspond bien à la distance entre plus proches voisins. Comme les deux distances doivent être sensiblement identiques, on en conclut que la valeur obtenue pour r_m est nettement trop élevée.

2. Le minimum ϵ de $V(r)$ varie suivant les cas entre 0,4 et 0,65 eV. Cette valeur est trop forte car si on calcule $g(r)$ en prenant $\epsilon \approx 0,5 \text{ eV}$ [13, 14] on obtient des valeurs correspondant à l'état solide.

La Fig. 7 montre pour $T = 1300^\circ\text{C}$ les

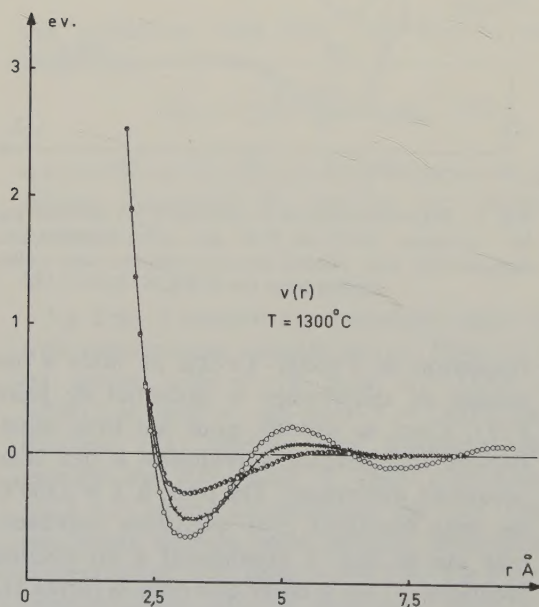


Fig. 7. Variation à $T = 1300^\circ\text{C}$ du potentiel $V(r)$ déduit de l'équation HNC et correspondant aux trois formes possibles de $c(r)$ montrées sur la Fig. 5.

potentiels $V(r)$ déduits de l'équation HNC et correspondant aux trois formes possibles de $c(r)$ montrées sur la Fig. 5. Il est ainsi clair qu'il est difficile de conclure quant à l'existence d'oscillations de longue portée dans le potentiel de paire $V(r)$.

De plus, même en faisant varier $i(k)$ dans les limites tolérées par l'expérience, les potentiels $V(r)$ fournis par l'équation HNC présentent toujours les mêmes caractéristiques (r_m et ϵ trop grands) qui les rendent inacceptables pour décrire les interactions atomiques dans le cuivre liquide.

6. CONCLUSION

Nous avons mesuré expérimentalement la fonction $i(k)$ du cuivre liquide à diverses températures et nous en avons déduit la fonction de distribution de paire $g(r)$ et la fonction de corrélation directe $c(r)$ à ces mêmes températures par inversion de Fourier. Une étude de la dépendance en température du maximum de $i(k)$ a montré que celui-ci suit une loi en $1/T$.

A partir des valeurs de $g(r)$ et de $c(r)$ nous avons essayé de déterminer le potentiel de paire $V(r)$. Les résultats fournis par les équations approchées de Percus-Yevick et de HNC n'étant pas satisfaisants, nous sommes amenés à conclure que ces approximations ne conviennent pas au cas du cuivre liquide, rejoignant en cela les conclusions auxquelles aboutissent North *et al.* [11] dans le cas du plomb.

Par une succession de transformations de Fourier, Schiff [15] a vérifié que nos résultats expérimentaux sont compatibles avec la condition $g(r) = 0$ pour $r < 2 \text{ \AA}$ [16, 17]. La Fig. 8 compare la courbe $i(k)$ expérimentale à une courbe $i(k)$ qui ferait pratiquement disparaître les oscillations de $g(r)$ pour r petit.

La partie répulsive du potentiel correspond donc bien à un modèle de sphères dures de diamètre $\sigma = 2,2 \text{ \AA}$, mais il n'est pas possible de conclure quant à l'existence d'oscillations

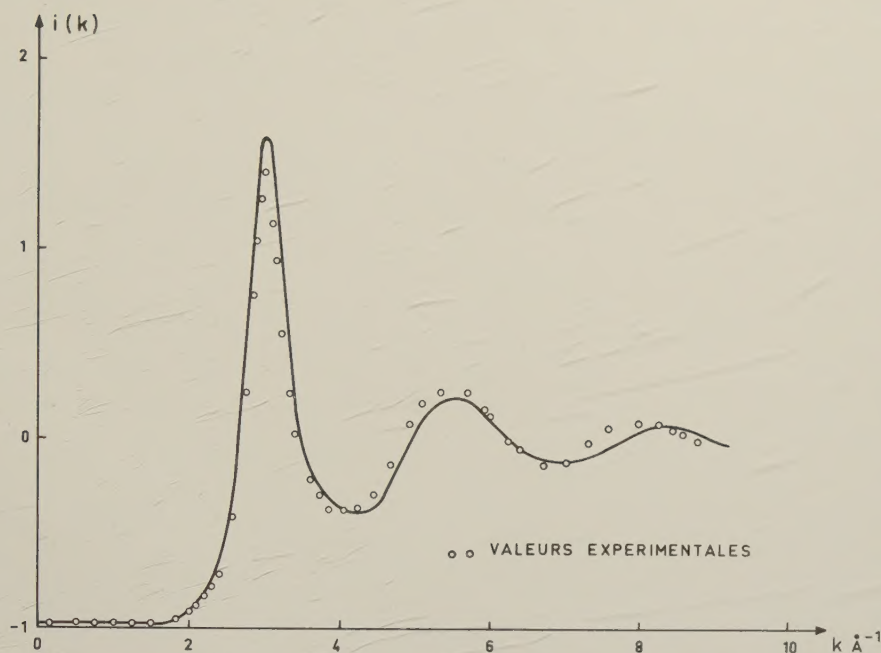


Fig. 8. Comparaison des courbes $i(k)$ expérimentale et théorique.

de longue portée. Il semble bien qu'actuellement on soit davantage en mesure de déterminer la partie répulsive du potentiel que sa partie asymptotique. Nous avons entrepris de nouvelles expériences concernant certaines terres rares (La, Ce) et plusieurs métaux de transition (Ni, Fe, Cr)[18] pour étudier en particulier une influence possible de l'anisotropie des liaisons électroniques sur les courbes de diffusion $i(k)$.

Remerciements—Les auteurs remercient vivement Madame F. Cyrot pour de nombreuses et fructueuses discussions, D. Schiff qui a bien voulu nous communiquer la courbe n° 8 et Monsieur M. Tournarie qui s'est chargé de la programmation des calculs de transformée de Fourier effectués sur l'ordinateur IBM 360/75 du C.E.N., Saclay.

REFERENCES

1. YVON J., *La Théorie Statistique des Fluides et l'Equation d'Etat*. Act. Sci. Ind. Hermann, Paris (1935).
2. BORN M. et GREEN H. S., *Proc. R. Soc. A***190**, 455 (1947).
3. GREEN H. S., *Molecular Theory of Fluids*, North-Holland, Amsterdam (1952).
4. ZERNICKE F. et PRINS J., *Z. Phys.* **41**, 184 (1927).
5. DEBYE P. et MENKE H., *Phys. Z.* **31**, 797 (1930).
6. GINGRICH N. S. *Rev. mod. Phys.* **15**, 90 (1943).
7. GUINIER A., *Théorie et Technique de la Radiocristallographie*. Dunod, Paris (1956).
8. ZERNICKE F. et ORNSTEIN L. S., *Proc. Acad. Sci. Amst.* **17**, 793 (1914).
9. LEVESQUE D., *Physica* **32**, 1985 (1966).
10. RICE S. A. et GRAY P., *The Statistical Mechanics of Simple Liquids*. Wiley, New York (1965).
11. NORTH D. M., ENDERBY J. E. et EGELSTAFF P. A., *Proc. phys. Soc. C*, série 2, **1**, 1075 (1968).
12. EGELSTAFF P. A., *Comptes Rendus de la Conférence de Brookhaven*. Taylor, London (1966).
13. de BOER J., *Rep. Progr. Phys.* **12**, 355 (1949).
14. MONTROLL E. W. et MAYER J. E., *J. chem. Phys.* **9**, 626 (1941).
15. SCHIFF D., Communication privée.
16. RAHMAN A., *J. chem. Phys.* **42**, 10, 3540 (1965).
17. KAPLOW R., STRONG S. L. et AVERBACH B. L., *Phys. Rev.* **138A**, 1336 (1965).
18. BREUIL M. et TOURAND G., *Phys. Lett.* **29A**, 506 (1969).

